

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号  
特表2003-524862  
(P2003-524862A)

(43) 公表日 平成15年8月19日 (2003.8.19)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	B 4 J 0 0 2
			P 5 G 3 0 1
C 0 8 K 3/04		C 0 8 K 3/04	5 H 0 2 6
3/20		3/20	
3/34		3/34	
審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 59 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2000-607294(P2000-607294)  
 (86) (22) 出願日 平成12年3月17日 (2000.3.17)  
 (85) 翻訳文提出日 平成13年9月19日 (2001.9.19)  
 (86) 国際出願番号 P C T / U S 0 0 / 0 6 9 9 9  
 (87) 国際公開番号 W O 0 0 / 0 5 7 5 0 6  
 (87) 国際公開日 平成12年9月28日 (2000.9.28)  
 (31) 優先権主張番号 6 0 / 1 2 5 , 1 3 8  
 (32) 優先日 平成11年3月19日 (1999.3.19)  
 (33) 優先権主張国 米国 (U S)  
 (31) 優先権主張番号 0 9 / 5 2 6 6 4 1  
 (32) 優先日 平成12年3月16日 (2000.3.16)  
 (33) 優先権主張国 米国 (U S)

(71) 出願人 クアンタム コンポサイツ, インコーポ  
レイテッド  
アメリカ合衆国 ミシガン 48706, ベ  
イ シティ, サウス バリー センター  
ドライブ 1310  
 (72) 発明者 バトラー, カート アイ.  
アメリカ合衆国 オハイオ 44048, キ  
ングスビル, ゲイジビル モンロー ロ  
ード 4585  
 (74) 代理人 弁理士 山本 秀策

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 高導電性成形化合物およびこれらの化合物を含有する燃料電池双極プレート

## (57) 【要約】

導電性重合体が開示されており、これは、-40~140° F の範囲の温度で酸性流れを受けたとき、腐食耐性が必要な用途で使用するのに適当であり、非常に複雑で薄い試験片に成形でき、そして不変の導電率、十分な強度および屈曲性、および適当な表面特性を示す。特に、本発明は、不飽和プレポリマー樹脂組成物を成形することを包含し、これは、高い装填量の導電性充填剤を有する。さらに、必要な特性を実現するために、これらの組成物は、レオロジー改質剤およびポリエチレンを含有する。表向きは、これらの改質剤は、見かけ分子量および三次元プレポリマーネットワーク構造を変えるように作用して、レオロジー欠陥を矯正する（これは、この成形プロセスでの過剰な樹脂微粒子分離およびプレート表面におけるバルク導電率の大きな変化を引き起こす）。この組成物は、電気化学セル（例えば、燃料電池）で使用するように開示されている。

BEST AVAILABLE COPY

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 以下を含有する電気化学セル流動フィールドプレート：

成形熱硬化性樹脂組成物であって、該成形樹脂組成物は、約0.050～約0.200インチの厚さおよび少なくとも55 S/cmのバルク導電率を有し、該成形樹脂組成物は、少なくとも、以下の反応生成物である：

a) 不飽和プレポリマー樹脂であって、該プレポリマー樹脂は、1種またはそれ以上の不飽和ポリエステルおよびビニルエステル樹脂を含有する；

b) 該樹脂と共重合可能な不飽和物質であって、該不飽和物質は、末端エチレン基を含有する；

c) 該組成物の全重量の少なくとも50%は、導電性充填剤が占める；

d) 開始剤であって、該開始剤は、該共重合を開始する；ならびに

e) 有効量のレオロジー改質剤であって、該レオロジー改質剤は、成形中において、該樹脂と該導電性充填剤との間の相分離を防止し、該レオロジー改質剤は、第II族の酸化物および水酸化物、カルボジアミド、アジリジン、ポリイソシアネート、ポリテトラフルオロエチレン、パーフルオロポリエーテル、ポリエチレン、粘土およびヒュームドシリカからなる群から選択される1種またはそれ以上の組成物である、

電気化学セル流動フィールドプレート。

【請求項2】 前記充填剤が、グラファイト充填剤であり、そして該導電性充填剤の量が、少なくとも65重量%である、請求項1に記載の電気化学セル流動フィールドプレート。

【請求項3】 前記共重合可能物質が、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、クロロスチレン、ビニルトルエン、ジビニルベンゼン、ジアリルフタレート、およびメタクリル酸メチル、およびそれらの混合物からなる群から選択される1種またはそれ以上の単量体である、請求項1に記載の電気化学セル流動フィールドプレート。

【請求項4】 以下のa)、b)、c)、d)およびe)を含有する、導電性成形組成物：

a) 100部の不飽和プレポリマー樹脂であって、該不飽和プレポリマー樹脂

は、不飽和ポリエステルおよびビニルエステル樹脂の1種またはそれ以上を含有する；

b) 不飽和単量体であって、該不飽和単量体は、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、クロロスチレン、ビニルトルエン、ジビニルベンゼン、ジアリルフタレート、およびメタクリル酸メチル、およびそれらの混合物からなる群から選択される；ここで、該単量体と該不飽和プレポリマー樹脂との比は、該a)およびb)の重量基準で、約40:60~約72:25である；

c) 少なくとも約225phrの導電性充填剤であって、該組成物から製造した成形生成物は、ASTM Test No. F1529-97に従って測定したとき、少なくとも約55S/cmのバルク導電率を有する；

d) 約0.5~約4.0phrの開始剤であって、該開始剤は、該共重合を開始する；ならびに

e) 約0.5~約20phrのレオロジー改質剤であって、該レオロジー改質剤は、第II族の酸化物および水酸化物、カルボジアミド、アジリジン、ポリイソシアネート、ポリテトラフルオロエチレン、パーフルオロポリエーテル、ポリエチレン、粘土およびヒュームドシリカおよびそれらの混合物からなる群から選択される1種またはそれ以上の組成物である、

導電性成形組成物。

【請求項5】 前記プレポリマー樹脂が、エポキシビニル樹脂、ビスフェノールフマレート樹脂、変性ビスフェノールフマレートポリエステル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ウレタン変性ビニルエステル樹脂、ウレタン変性ビニルエステル樹脂、ビスフェノール-エポキシビニルエステル樹脂、エラストマー変性ビニルエステル樹脂、エポキシノボラックビニルエステル樹脂および不飽和イソシアヌレートビニルエステル樹脂からなる群から選択される、請求項4に記載の導電性成形組成物。

【請求項6】 前記レオロジー改質剤が、酸化マグネシウムおよび/または酸化カルシウムを含有し、そして前記有効量が、約0.5~約20phrである、請求項4に記載の導電性成形組成物。

【請求項7】 前記共重合可能物質が、スチレンおよびメタクリル酸メチル

からなる群から選択される1種またはそれ以上の単量体である、請求項4に記載の導電性成形組成物。

【請求項8】 さらに、カーボンブラックを含有する、請求項4に記載の導電性成形組成物。

【請求項9】 請求項4に記載の硬化反応生成物を含有する、導電性成形品

。 【請求項10】 前記成形品が、射出成形または圧縮成形により製造される、請求項9に記載の導電性成形品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

本特許出願は、1999年3月19日に出願された米国仮特許出願第60/125,138号に基づいている。

## 【0002】

## (発明の分野)

本発明の分野は、熱硬化性バルク成形組成物を使用する方法のような成形方法に特に有用な高導電性組成物である。これらの成形組成物は、高解像度複合構造に形成できる。例えば、それらは、薄板様試験片（例えば、千分の60～200インチ）に成形でき、これらは、非常に狭く比較的に滑らかな流路の複雑に模様を付けたネットワークを有する。これらの試験片は、電気化学セル双極プレートとして使用される。これらのプレートは、望ましくは、少なくとも40、50、60、70、80、90または96 S/cmのバルク導電率を有する。それらはまた、所望の表面特性；熱、温度、薬品耐性および収縮耐性；強度；および価格を有する。

## 【0003】

## (発明の背景)

導電性重合体は、伝統的な導電性材料の代替物を提供する際に用途があり、これらは、しばしば、複雑な部品を製造するのに、多大な労働費が関与している。特に、多量の製品が要求されている場合、重合体の成形費用は、他の材料に対する同程度の機械切削にかかる費用よりも、ずっと費用効率が高いことが判明される。しかしながら、過去において、高レベルの導電率および所望の成形特性の両方を達成することは、困難であることが判明している。一般に、十分なレベルの導電率を達成するためには、重合体マトリックス中にて、適当な充填剤の高レベルの重量割合が存在することが必要である。しかしながら、これらの高装填レベルは、得られる組成物の強度、耐久性および成形性に伴う問題を引き起こす。

## 【0004】

特に、先に言及した強度、耐久性および成形の問題を解決することが有益な1領域には、燃料電池での応用がある。電気化学的燃料電池は、清浄で環境にやさ

しい潜在的に無限なエネルギー源として、非常に魅力がある。これらの燃料電池は、それに加えて、小規模なエネルギー消費（例えば、家庭での用途）、または工業規模の用途、および商用発電にさえ、適当な規模で、構築できる。それらは、電力の小さい電気器具（例えば、コンピューターまたはキャップ設備）、または自動車および他の輸送形態のための携帯用途を有する。これらの異なる用途は、サイズが異なるものの、その基本的な構造は、1キロワット未満から数千キロワットまでの発電用に対して、同じである。

## 【0005】

基本的には、燃料電池は、ガルバーニ電池であり、ここで、燃料の化学エネルギーは、電気化学的プロセスによって、直接的に電気エネルギーに変換される。この燃料電池の基本的な成分は、アノードおよびカソードを含む電極、電極触媒、および電解質である。液体および固体の両方の電解質燃料電池を完成する作業が行われており、本発明は、両方の型の燃料電池において、用途が見出され得る。

## 【0006】

固体電解質には、高分子膜が挙げられ、これらは、典型的には、水素で燃料供給される陽子交換膜として作用する。これらの膜は、通常、過フッ素化スルホン酸高分子膜を含み、これは、2個の触媒化電極（これは、電極触媒として、炭素上に支持された白金を利用し得る）間で挟まれている。水素燃料電池は、反応チャンバを形成し、これは、そのアノードにおいて、水素を消費する。このカソードでは、酸素は、その電極触媒部位において、陽子および電子と反応して、その反応生成物として、水を生じる。この電極の領域では、三相界面が形成され、この電極、電解質および気相の間では、微妙なバランスが維持されなければならない。

## 【0007】

他の電極の使用が関与しているシステムもまた、研究されている。これらには、アルカリ燃料電池、リン酸燃料電池、熔融炭酸塩燃料電池、および固形酸化物燃料電池が挙げられる。しかしながら、それらの原理は、これらの製品を完成する際の一部の問題と同様に、類似している。

## 【0008】

燃料電池反応器は、単一電池または複数電池の積み重ねを含み得る。いずれの場合でも、この電池は、少なくとも2枚の非常に導電性の流動フィールドプレートを含み、これには、複数の機能を果たす。これらのプレートは、電流収集器として機能し得、これは、この燃料電池の電圧端子と電極との間で、電氣的な連続性を与える。これらはまた、機械的な支持（例えば、その膜／電極のアセンブリに対して）を与える。それに加えて、これらのプレートは、これらの電極へと反応物を輸送するように作用し、先に言及した微妙な相バランスを確立するのに必須である。

## 【0009】

典型的には、この燃料電池プレートは、薄くて比較的に平らなプレート部材であり、これらは、相互連絡しているチャンネルの非常に複雑なネットワークを含み、このネットワークは、このプレートの流動フィールド領域を形成する。これらのチャンネルの構造は、反応物の正常な流れを維持するために、また、チャンネル形成または停滞領域の形成（これは、燃料電池の性能を悪化させる）を回避するために、非常によく開発されている。これらの反応物の流れを正しく管理すること、およびこれらの電極触媒を反応物の適当なバランスと共に正確に連続的に供給することは、重大である。それゆえ、これらのプレートが、非常にうまく設計した流れ迷路内で、明瞭な流路を規定し維持することは、必須である。さらに、適当な寿命を保証するために、これらのプレートは、種々の条件下において、表面腐食に抵抗できなければならない。例えば、燃料電池は、外部に配置されて外の天候の影響を受け得る。それゆえ、これらの電池は、 $40 \sim 200^{\circ}\text{F}$ の範囲の温度で、応力割れおよび腐食に対して抵抗性でなければならない。さらに、この電池内の状態は、腐食性であるので、これらの電池はまた、これらの温度での種々の腐食物質からの化学的な攻撃に対して抵抗性でなければならない。例えば、これらのプレートは、この燃料電池の型に依存して、脱イオン水、メタノール、ギ酸、ホルムアルデヒド、ヘビーナフサ、フッ化水素酸、テトラフルオロエチレン、およびヘキサフルオロプロピレンの影響を受け得る。さらに、この燃料電池内の状態は、高温（すなわち、 $150 \sim 200^{\circ}\text{F}$ ）だけでなく、高圧（

すなわち、常圧 $\sim 30$  p. s. i.) に至り得る。腐食分解は、この燃料電池内での流動パターンを変えることにより殆ど確実にシステムの故障を引き起こすので、回避されなければならない。

## 【0010】

燃料電池プレートに対する種々の要件を解決する過去の試行には、金属および機械切削したグラファイトのプレートを使用することが挙げられる。金属プレートを使用すると、1電池あたりの重量が重くなり、機械切削のコストが大きくなり、おそらく、腐食の問題が起こる。機械切削したグラファイトプレートは、この重量および腐食の問題を解決するが、機械切削のコストが高く、特に、非常に薄いプレートとして作製したとき、脆い製品ができる。グラファイト/ポリ(フッ化ビニリデン)プレートが一部で使用されているが、これらは、高価で脆弱であって長いサイクル時間がかかるという特徴がある。

## 【0011】

米国特許第4,197,178号の内容は、電気化学セルの作業および組成物の教示について、本明細書中で参考として援用されている。米国特許第4,301,222号の内容は、電気化学セル用のグラファイトベースの分離器の教示について、本明細書中で参考として援用されている。

## 【0012】

## (発明の要旨)

過去において、従来公知のバルク成形化合物は、多量の導電性充填剤(例えば、グラファイト)を添加することにより、導電性になるように調節されている。成形中にて、その液体樹脂相は、この充填剤から分離されて、この成形から除外されることが観察された。さらに、この発生は、薄い成形試験片で割れを引き起こす傾向があることが観察された。さらに、これらの試験片内の異なる位置でのバルク導電性の測定は、矛盾していた。本発明に従って、前述の問題を解決する組成物が調合できることが発見された。特に、これらの調合は、高い装填量の導電性充填剤を備えた樹脂マトリックスの使用；種々の追加添加剤(例えば、開始剤、離型剤、およびカーボンブラック)；および1種またはそれ以上のレオロジ一剤(これは、第II族の酸化物、アルカリ金属酸化物、カルボジアミド、ポリ



イソシアネート、ポリエチレンおよびポリテトラエチレンフルオロエチレンからなる群から選択される)を含む。この成形剤が作用する機構の1つに考えられる説明には、このプレポリマー(例えば、ビニルエステル樹脂または不飽和ポリエステル樹脂)の見かけ分子量を確立するように作用することがある。あるいは、これらの試薬は、例えば、成形中の剪断を少なくすることにより、流動を促進し得る。これらのレオロジー剤を使用すると、相分離だけでなく、割れおよび矛盾した導電性測定がなくなる。これらの問題は、非常に高濃度の導電性充填剤と共に成形される試験片の複雑な構造の結果であると予想されている。

## 【0013】

成形および割れの問題を解決することに加えて、他の特性(例えば、熱膨張率、導電率および熱伝導率、収縮抵抗および機械的特性)は、本発明を使用する結果として、さらに均一になるかおよび/または改良され得る。前述の改良に加えて、本発明の樹脂組成物は、高いガラス転移温度を示し、成形部分の熱強度が改良されることが見出された。開始剤の種類および量ならびに禁止剤の種類および量を制御することにより、このプレポリマーに対してゲル化時間および硬化時間の両方を最適化することによって、さらに改良することもまた、可能である。

## 【0014】

これらの組成物から成形した試験片における前述の改良により、本発明の追加実施態様として、双極プレートの低価格大量生産が可能となる。これらは、固定動力装置だけでなく、携帯型燃料電池に使用できる。

## 【0015】

(発明の詳細な説明)

本発明は、導電性成形組成物での改良に関する。特に、これらの組成物は、圧縮成形プロセスおよび射出成形プロセスで使用できる。さらに、これらの組成物により、高濃度の導電性充填剤を有する薄くて複雑な試験片の製造が可能となる。

## 【0016】

シート成形組成物およびバルク成形組成物は、米国特許第5,998,510号;第5,342,554号;第5,854,317号;第5,744,816

号；および第5，268，400号で記述されている；これらの全ての内容は、当該技術分野で公知の成形組成物の種々の改良に関するそれらの教示について、本明細書中で参考として援用されている。

## 【0017】

成形樹脂組成物の1成分には、架橋可能プレポリマー（例えば、不飽和ポリエステル樹脂またはビニルエステル樹脂）がある。望ましくは、このプレポリマーは、比較的到低い分子量（例えば、約200～約5000（重量平均））を有する。それらは、上記特許（その内容は、本明細書中で参考として援用されている）の実施例で、詳細に記述されている。これらのポリエステル樹脂は、不飽和多塩基酸および／または無水物とポリオール（例えば、ジヒドロキシまたはトリヒドロキシ化合物）との縮合から誘導された縮合生成物である。望ましくは、これらのポリエステル樹脂は、二酸または二酸無水物（これは、一般に、約3個～約12個の炭素原子、さらに好ましくは、約4個～約8個の炭素原子を有する）とポリオールまたは環状エーテル（これは、約2個～約12個の炭素原子、さらに好ましくは、約2個～約6個の炭素原子を有する）とのエステル化反応生成物である。

## 【0018】

一般に、使用できるビニルエステル樹脂は、エポキシ樹脂と一官能性エチレン性不飽和カルボン酸との反応生成物である。さらに具体的には、これらのビニルエステル樹脂は、エポキシ末端オリゴマー（例えば、エポキシ官能化ビスフェノールA）とアクリル酸またはメタクリル酸との反応生成物であり、このオリゴマー上でアクリル末端基を形成する。これらのビニルエステルは、大部分は、末端不飽和を有するのに対して、これらの不飽和ポリエステルは、大部分は、内部不飽和を有する。

## 【0019】

この成形組成物の別の成分は、この樹脂と共重合可能な1種またはそれ以上の不飽和単量体である。望ましくは、この成分は、室温で、この樹脂成分を溶解できる。それゆえ、1実施態様では、この樹脂は、残りの成分と配合する前に、この単量体成分に溶解される。適当な単量体の例には、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチ

レン、クロロスチレン、ビニルトルエン、ジビニルベンゼン、ジアリルフタレート、メタクリル酸メチル、およびこれらの混合物があり、好ましい単量体は、スチレンおよびメタクリル酸メチルである。単量体と樹脂との比は、重量基準で、望ましくは、約40:60~約75:25、好ましくは、約40:60~約65:35である。

#### 【0020】

この成形組成物の別の成分は、充填剤である。本発明によれば、その主な充填剤は、最終成形品のに導電性を与えるための導電性充填剤である。好ましい充填剤は、グラファイト粒子、特に、合成結晶性グラファイト粒子（例えば、現在、Asbury, New JerseyのAsbury Graphiteにより、Asbury 4012の名称で調達したもの）である。このグラファイトは、直径150ミクロンより大きい粒子を10%未満で有し、直径44ミクロンより小さい粒子を10%未満で有することにより、特徴付けられる。他のグラファイト充填剤には、以下が挙げられる：Ashbury A99、Ashbury 3243、Ashbury変性4012、Ashbury 3285、Ashbury 230U；Timrex R KS 75および150、Timrex R KC 44（全て、WestlakeのTIMCALにより販売されている）、Ohio；およびCalgraph（これは、Valencia, CaliforniaのSGL Technic Incから販売されている）。この充填剤は、少なくとも50重量%の装填量で使用される。他の導電性充填剤（例えば、他の型のグラファイト（グラファイトピッチベースの繊維を含めて）、金属粒子、または金属被覆粒子）は、グラファイト充填剤と共に、または単独でさえ、使用され得る。望ましくは、導電性充填剤は、この成形組成物の少なくとも約50重量%、約60重量%、または約65重量%である。さらに望ましくは、この充填剤は、この成形組成物の約70~71重量%または約78重量%よりも多い。あるいは、この量は、少なくとも約250 phr、さらに好ましくは、少なくとも約275 phr、または300 phrでさえ、表わすことができる。あるいは、これらの導電性充填剤は、約0.060~約0.200インチの厚さを有する成形品について、ASTM Test Standard No. F15

29-97に従って測定したとき、少なくとも約40、約50、約60、約70、約80、約85、約90または約96 S/cmのバルク導電率を生じる有効量で、存在する。燃料電池プレートにおける現在の技術は、少なくとも約55、好ましくは、少なくとも約70のバルク導電率を使用する。

#### 【 0 0 2 1 】

開始剤は、この成形組成物の他の成分である。この開始剤は、この樹脂および単量体の共重合を開始する。開始剤には、成形条件下にて、正しい濃度で、ラジカルを形成できる任意の遊離ラジカル開始剤が挙げられる。それらには、過酸化物、ヒドロペルオキシド、レドックス系、ジアゾ化合物、過硫酸塩、過安息香酸塩などが挙げられ得る。これらの開始剤は、典型的には、約0.05～約5重量%の量、さらに好ましくは、約0.1～約2重量%の量で、使用される。あるいは、これらの量は、樹脂100重量部あたりの部、すなわち、約0.5～約4.0 phr、好ましくは、約0.7～約3.0 phr、最も好ましくは、約0.8～約2.25 phrで、表わされ得る。あるいは、成形用途には、高温開始剤（例えば、Dicup、例えば、過酸化ジクミル）が使用でき、この場合、さらに高い開始温度が望ましい。

#### 【 0 0 2 2 】

この改良成形組成物の必須成分には、レオロジー改質剤があり、これは、例えば、この樹脂プレポリマーの鎖伸長により、その分子量を大きくするように作用し得る。適当な改質剤には、第II族の酸化物および水酸化物（例えば、酸化カルシウムまたはマグネシウム）；カルボジアミド；アジリジン；およびポリイソシアネートが挙げられる。前述の改質剤は、カルボキシ部位またはヒドロキシ部位において、その重合体骨格に共に反応させることにより、化学的に作用すると考えられている。他の適当な改質剤には、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）；パーフルオロポリエーテル（PFPE）、およびポリエチレンが挙げられる。これらの改質剤は、剪断を低くして、それにより、成形中において、この組成物中の流れを促進するように作用し得る。ヒュームドシリカは、物質の一例であり、これは、機械的に作用して、成形粘度を高めるように作用し得、従って、本発明の適当なレオロジー改質剤であり得る。2種またはそれ以上のレオロジー

改質剤の組合せは、最適な特性のために、望まれ得る。この用途では、それらは、（特に、この導電性充填剤の高い装填量（すなわち、グラファイトの50重量%を超え、65重量%でさえ）を考慮して）、この導電性充填剤からの樹脂の相分離を防止するために、この樹脂構造を変性するように使用される。これらの改質剤は、さらに、一般に、高解像度の導電性重合体燃料電池プレートが完成できるようにするために、使用される。

### 【 0 0 2 3 】

望ましくは、これらのレオロジー改質剤は、成形中の相分離を防止する有効量で、使用される。この用途の目的のために、成形は、望ましくは、約400～約5000 psi、好ましくは、約2000～約3500 psi、最も好ましくは、約2500～約3000 psiの圧力でなされる。第II族酸化物（第II族水酸化物およびこれらの化合物の混合物を含めて）の望ましい量は、約0.1～約1または約2重量%、さらに望ましくは、約0.2または約0.3～約0.7または約0.8重量%である。これはまた、約0.5～約4.0 phr、好ましくは、約1.0～約3.0 phr、最も好ましくは、約1.5～約2.5 phrとして、表わすことができる。好ましい具体的な化合物には、酸化マグネシウム、または水酸化マグネシウムまたは酸化カルシウムが挙げられる。適当な酸化マグネシウム添加剤の例には、Danver, MAのMorton Thiokolから「Elastomag」の商品名で販売されている99%純粋酸化マグネシウムがある。他の例には、Plasticolorsにより「pg-9033」の商品名で販売されている酸化マグネシウム分散体、および「pg-91146」の商品名でまたPlasticolorsにより販売されている水酸化マグネシウム分散体が挙げられる。別の適当な水酸化マグネシウムには、Barcroftがあり、これは、粉末化した型である。アジリジン化合物の例としては、XAMAの商品名称でEIT, Inc. から調達した多官能性アジリジン（XAMA-2（これは、トリメチロールプロパントリス（ $\beta$ -（N-アジリジニル）プロピオネートとして同定されている））、特に、XAMA-7（これは、ペンタエリスリトールトリス-（ $\beta$ -（アジリジニル）プロピオネート）として同定されている））；PFAZ322（これは、三官能性アジリジンとして同定

されている)を含めたlonacの商品名のSybron Chemicalsの製品、CX-100を含めたZeneca Resinsの製品(これは、多官能性アジリジンとして同定されている)が挙げられる。アジリジンおよび/またはポリイソシアネート改質剤の望ましい量は、約1~約10または約15重量%であり、さらに望ましくは、約2または約3~約8または約9重量%である。これはまた、約0.5~約20 phr、好ましくは、約1~約17 phr、最も好ましくは、約2~約15 phrとして、表わすことができる。ポリイソシアネートは、一般に、米国特許第5,268,400号、6欄、59行~7欄、17行で、さらに詳細に記述されている。使用できる具体的なジイソシアネートには、ジフェニルメタンジイソシアネート(例えば、「Rubinate」RMF-1780の商品名で、West Deptford, New JerseyのICI Americasから販売されているもの)がある。それに加えて、適当なジイソシアネートには、Lupranate MP-102(BASF製の溶媒無しのウレタン変性ジフェニルメタンジイソシアネート)がある。ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)(および/またはパーフルオロポリエーテル(PFPE))の所望量は、約0.5~約1または約2重量%、さらに好ましくは、約0.6または約0.7~約1.8または約1.3重量%である。これはまた、約0.5~約20 phr、好ましくは、約3~約15 phr、最も好ましくは、約5~約12 phrとして、表わすことができる。適当な微粒子PTFE粉末(これは、Coulter Counterにより、\_\_\_\_ミクロン未満の平均粒径を有する)は、West Chester, PennsylvaniaのMarshall Products Companyから、「Marzon #5」の商品名で販売されている。直鎖状低密度ポリエチレン(例えば、FN510の商品名で、Houston TexasのEquistarから販売されているもの)を使用するのが好ましい。それを、約3~約20 phr、さらに好ましくは、約4~約17 phr、最も好ましくは、約5~約15 phrの量で使用するのが好ましい。ヒュームドシリカは、約0.5~約20 phr、好ましくは、約1~約10 phrで利用できる。

成形組成物への他の任意の成分には、ウレタンベースまたはウレタン含有オリゴマーまたは重合体、ポリ酢酸ビニルまたはポリエチレンのような低収縮添加剤；繊維状強化剤（例えば、綿ガラスマイクロファイバーまたはグラファイトマイクロファイバー）；可撓化剤；離型剤；保存中または成形の初期段階での早期重合を禁止する重合禁止剤；ヒュームドシリカのような粘度調節剤；およびカルシウム、亜鉛またはマグネシウムのステアリン酸塩のような金型潤滑剤が挙げられる。その表面導電性に影響を及ぼし成形品の外観を変えるために、カーボンブラックが添加され得る。適当なカーボンブラックには、 $270 \text{ m}^2/\text{g}$ の窒素表面積、 $145 \text{ m}^2/\text{g}$ のSTSA表面積、35メッシュで0ppmおよび325メッシュで20ppmのふるい残渣を有する導電性低残渣カーボンブラックが挙げられ、これは、例えば、Jamesburg, NJのColumbia ChemicalsからConductex 975の商品名で販売されている。また、適当な導電性カーボンブラックは、Ketjenblack EC-300JおよびEC-600JDの商品名で、Chicago, IllinoisのAkzo Nobel Chemicalsから調達される。Boston MAのCabot Corporationもまた、導電性カーボンブラックを提供している。ポリエチレンおよびヒュームドシリカは、前述の機能に加えて、レオロジー改質剤として機能できることが注目される。

#### 【0025】

これらの成形組成物は、連続法またはバッチ法のいずれかを含めた種々の混合条件を使用して、また、種々の公知の混合設備を使用して、調合され混合され得る。具体的な例は、実施例の項目で述べる。これらの組成物は、有利には、成形前、適当な時間にわたって保存され得る。これらの組成物は、圧縮成形および射出成形を含めた種々の方法により、成形できる。これらの組成物は、これらの種類の成形に典型的な条件（約400～約5000psi、好ましくは、約2000～約3500psi、最も好ましくは、約2500～約3000psiの圧力、および約225～約400°Fの温度を含めて）下にて、成形できる。滞留時間は、約70秒間～約4分間である。これらの組成物は、薄いまたは複雑な導電性製品を含めた複雑な形状（例えば、約0.050～約0.200インチ、さら

に好ましくは、約0.060～約0.150インチの厚さを有するもの)を成形するのに有用である。これらの組成物は、上で示した厚さで、少なくとも40、50、60、70、80、85、90または96 S/cmのバルク導電率を有する製品に有用である。この組成物に由来の製品は、望ましくは、ASTM試験No. D638に従って測定した約1500～約5000 psiの引張り強度およびASTM試験no. D790に従って試験したとき、約2500～約10,000 psiの曲げ弾性率を有する。

## 【0026】

本発明の組成物から製造した成形品は、複雑な形状、導電性だけでなく強度および腐食耐性が要求される種々の用途に有用である。圧縮成形で製造できる1つの特に有利な製品には、燃料電池で使用する双極プレートがある。このようなプレートの一例は、図1で示されている。このプレートの図面は、本発明の導電性化合物の成形性能を図示することを意図している。それは、必ずしも、最適な、または操作可能なフィールド流動設計を提供する目的ではない。それは、いずれの様式でも、本発明を限定するべきではない。プレート10は、1個またはそれ以上の略平行および/または蛇行したフローチャンネル12を備えた流体流れ面を含む。これらのフローチャンネルは、ポート14および16（これらは、対応する入口と流体連絡しており、マニホールド18および19を出ていく）を通して、流体を受容し移送する。このプレートは、長さおよび幅が1～20インチで変わる寸法を有し、0.02～0.3インチの厚さを有し、このフローチャンネルの断面深さは、約0.005～0.080インチの範囲である。隣接フローチャンネル部分を隔てているランドの断面幅は、0.01～0.1インチの範囲である。このプレートは、多数の周辺スルーホール20を含み得、これらは、燃料輸送用のマニホールドとして作用する。

## 【0027】

図2は、燃料電池の未組み立て部品を図示している。この燃料電池は、ベースユニット12（これは、改質装置14を受容する陰刻手段を含む）および燃料電池スタック16（これは、複数の双極プレート20から構成されており、これらのプレートは、スタックキャップ22とスタックベース24との間に挟まれている）



る)を有する。この燃料電池は、さらに、熱交換器26を含む。囲壁30は、このユニットに対して、漏れ防止ハウジングを提供する。

【0028】

(実施例)

以下の実施例は、以下で述べる成分を使用する。

【0029】

樹脂Aは、Columbus, OhioのAshland Chemical Co. から入手できるHetron 922である。それは、低粘度のエポキシビニルエステル樹脂である。それは、約55重量%の固形分および約45重量%の反応性単量体である。

【0030】

樹脂Bは、Research Triangle Park, NCのReichhold Chemicals, Inc. 製のAtlac 382ESである。それは、ビスフェノールフマレート樹脂として、特徴付けられる。それを、スチレンで、約55重量%の固形分まで希釈した。

【0031】

樹脂Cは、スチレンで55重量%の固形分まで希釈したDion 6694である。それは、Reichhold Chemicals, Inc. から入手できる。それは、変性ビスフェノールフマレートポリエステルとして特徴付けられる。

【0032】

樹脂Dは、Kansas City, MOのCook Composites and Polymers製の42-2641である。それは、スチレンで、55重量%の固形分まで希釈した。それは、不飽和ポリエステル樹脂として、特徴付けられる。

【0033】

樹脂Eは、Reichhold Chemicals, Inc. 製のATLAC 3581-61である。それは、50重量%のスチレンと組み合わせた19重量%のビニルエステル樹脂、27重量%のポリエステルおよび4重量%のウレ

タン重合体として、特徴付けられる。それゆえ、それは、スチレンで50重量%の固形分まで希釈した。

## 【0034】

樹脂Fは、Reichhold Chemicals, Inc. 製の580-05である。それは、ウレタン変性ビニルエステル樹脂として、特徴付けられる。それは、スチレンで54重量%の固形分まで希釈した。

## 【0035】

樹脂Gは、Reichhold Chemicals, Inc. 製の9100である。それは、ビスフェノール-エポキシビニルエステルとして、特徴付けられる。それは、スチレンで54~58重量%の固形分まで希釈した。

## 【0036】

樹脂Hは、Dow Chemicals, Inc. 製のDow Derakane R8084である。それは、エラストマー変性ビニルエステル樹脂として、特徴付けられる。それは、スチレンで50~60重量%の固形分まで希釈した。

## 【0037】

樹脂Iは、Reichhold Chemicals, Inc. 製の9480-00である。それは、エポキシノボラックビニルエステルとして、特徴付けられる。それは、スチレンで53.5重量%の固形分まで希釈した。

## 【0038】

樹脂Jは、Reichhold Chemicals, Inc. 製のAtlac 31-632である。それは、不飽和イソシアヌレートビニルエステル樹脂である。

## 【0039】

レオロジー改質剤Aは、Danvers, MAのMorton Thiokol, Inc. 製のElastomagである。それは、99%純粋酸化マグネシウムとして、特徴付けられる。

## 【0040】

レオロジー改質剤Bは、ポリイソシアネートである。これらの実験で使用した

物質は、Cook Composites and Polymers製の40-7263である。それは、17.7~20.9のNCO含量、110~170の粘度、87°Fの引火点および40°Fの結晶化点により、特徴付けられる。

## 【0041】

レオロジー改質剤Cは、Reichhold, Inc.製のRCI RD THL55（これはまた、RD-1070としても知られている）である。それは、具体的には、ポリウレタン樹脂である。

## 【0042】

レオロジー改質剤Dは、ICIから入手できるRubinate 1780である。それは、重合体メチレンジフェニルジイソシアネートとして、特徴付けられる。

## 【0043】

レオロジー改質剤Eは、West Chester, PennsylvaniaのMarshall Products Company製のMarzon #5である。それは、細かく分割した粉末ポリテトラフルオロエチレンとして、特徴付けられる。

## 【0044】

レオロジー改質剤Fは、FN-510であり、これは、低密度直鎖状ポリエチレンである。

## 【0045】

開始剤Aは、Dupont, I & B Industrial and Biochemical Dept, Wilmington DEから入手できるVazo (2, 2-アゾビスイソブチロニトリル)である。

## 【0046】

開始剤Bは、Pittsburgh, PAのDurr Marketingから入手できる第三級ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート (Triginox BPIC)である。

## 【0047】

開始剤Cは、Durr Marketingから入手できる過安息香酸t-ブチル(TBPB)である。

【0048】

開始剤Dは、Durr Marketingから入手できる1,3ジ-tert-ブチルパーオキシ-3,5,5-トリメチルシクロヘキサン触媒(Trig 29B75)である。

【0049】

この離型剤は、ステアリン酸カルシウムである。

【0050】

グラファイトAは、Asbury, NJのAsbury Graphiteから入手できる合成結晶性グラファイトである。それは、直径150ミクロンより大きい粒子を10%未満で有しかつ直径44ミクロンより小さい粒子を10%未満で有することにより、特徴付けられる。それは、4012の名称で入手できる。

【0051】

グラファイトBは、SGL 02の商品名称で、Valencia, CaliforniaのSGL Technicから入手できる非常に細かい導電性微粒子グラファイトである。

【0052】

グラファイトCは、SGLVFINEの商品名称でValencia, CaliforniaのSGL Technicから入手できる導電性微粒子グラファイトである。

【0053】

グラファイトDは、Asbury, NJのAsbury Graphiteから入手できる。それは、改良型の4012製品である。

【0054】

グラファイトEは、3243の商品名称でAsbury, NJのAsbury Graphiteから入手できる導電性薄片グラファイトである。それは、直径75ミクロンより大きい粒子を18%未満で有しかつ直径44ミクロンより小

さい粒子を65%未満で有することにより、特徴付けられる。

【 0 0 5 5 】

グラファイトFは、230Uの商品名称でAsbury, NJのAsbury Graphiteから入手できる導電性薄片グラファイトである。それは、直径44ミクロンより小さい粒子を100%有することにより、特徴付けられる。

【 0 0 5 6 】

グラファイトGは、商品名称A99でAsbury, NJのAsbury Graphiteから入手できる合成グラファイトである。それは、直径44ミクロンより大きい粒子を3%未満で有しかつ直径44ミクロンより小さい粒子を99%未満で有することにより、特徴付けられる。

【 0 0 5 7 】

グラファイトHは、KS 75の名称でTimrex America, Inc. から入手できる合成グラファイトである。それは、直径96ミクロンより大きい粒子を95%未満で有しかつ直径75ミクロンより小さい粒子を95%未満で有することにより、特徴付けられる。

【 0 0 5 8 】

グラファイトIは、KS 150の名称でTimrex America, Inc. から入手できる合成グラファイトである。それは、直径180ミクロンより小さい粒子を少なくとも95%で有することにより、特徴付けられる。

【 0 0 5 9 】

グラファイトJは、KC 44の名称でTimrex America, Inc. から入手できる合成グラファイトである。それは、直径48ミクロンより小さい粒子を少なくとも90%で有することにより、特徴付けられる。

【 0 0 6 0 】

カーボンブラックBは、 $270\text{ m}^2/\text{g}$ の窒素表面積、 $145\text{ m}^2/\text{g}$ のSTSA表面積、35メッシュで0ppmおよび325メッシュで20ppmのふるい残渣を有する電氣的導電性低残渣カーボンブラックとして特徴付けられ、これは、Jamesburg, NJのColumbia ChemicalsからConductex 975の商品名で販売されている。

## 【 0 0 6 1 】

カーボンブラックCは、Black Pearlsの商品名でBoston, MAのCabot Corporationから調達した導電性カーボンブラックであるのに対して、グラファイトDは、商品XC-72でこの企業から調達した。

## 【 0 0 6 2 】

カーボンブラックEは、Ketjenblack EC-300JおよびEC-600JDの商品名でChicago, IllinoisのAkzo Nobel Chemicalsから調達した導電性カーボンブラックである。EC-300Jは、740~840mg/gのヨウ素吸収；310~345cm<sup>3</sup>/100gの細孔容量および125~145kg/m<sup>3</sup>の見かけバルク密度を有する。EC-600JDは、1000~1150mg/gのヨウ素吸収；480~510cm<sup>3</sup>/100gの細孔容量および100~120kg/m<sup>3</sup>の見かけバルク密度を有する。

## 【 0 0 6 3 】

それらのガラス繊維は、Owens-Corning Fiberglass製であり、特定長にハンマー製粉された連続ガラスフィラメントとして特徴付けられ、強化充填剤媒体として使用される。

## 【 0 0 6 4 】

その禁止剤は、2, 6-ジ-第三級ブチル-p-クレゾール（ビニルトルエン中で25%）であった。

## 【 0 0 6 5 】

これらの成形組成物は、一般に、この樹脂、単量体開始剤、禁止剤、離型剤およびレオロジー改質剤（もし存在するなら）を高剪断カウ（cowells）調合器に添加して2分間ブレンドすることにより、調製される。Baker Perkin Mixerにて、この混合物に、この導電性充填剤を添加し、そして15分間混合する。混合が完了すると、この組成物を適当なバリアバッグに入れ、そして成形前、およそ1日間にわたって、熟成させる。

## 【 0 0 6 6 】

これらの成形組成物の成形パラメータは、以下のものである：飾り板用には、成形温度は、295°Fであり、3分間の成形時間および173gの充填重量であった。新型双極プレートの成形温度は、290°Fであり、3分間の成形時間および300gの充填重量であった。種々のレオロジー添加剤（濃厚剤）と組み合わせて導電性充填剤と共に特定の熱硬化性樹脂を使用すると、電気化学的（例えば、燃料電池双極）プレートの大量生産で利用できる製品を有することに関して、双極プレート組成物を改良することが認められた。

## 【 0 0 6 7 】

その調合を変えた成果には、割れのない成形化合物、金型からの良好な熱強度、低い製造コスト、短いサイクル時間、良好な全体的電気的導電率、高い機械的特性、および良好なレオロジー特性が挙げられる。

## 【 0 0 6 8 】

表1Aでは、Control L-23012は、プレートの成形中に割れを受け、そして成形中に導電性充填剤が相分離するために、このプレートの表面に沿って不均一な導電率および抵抗率を有した。Samples L-23185、L-23120、L-23119およびL-23126は、所望の特性を有していた。

## 【 0 0 6 9 】

表1Bでは、Samples L-23125、L-23186、L-23039は、所望の特性を有していた。Samples L-23184およびL-23022は、最適なバルク導電率よりも低い導電率および最適な抵抗率よりも高い抵抗率を有していた。

## 【 0 0 7 0 】

表1Cでは、Samples L-23023、L-23063、L-23024、L-323027およびL-23026は、最適なバルク導電率よりも低い導電率および最適な抵抗率よりも高い抵抗率を有していた。

## 【 0 0 7 1 】

表1Dでは、Samples L-23209およびL-23215は、良好な特性を有していた。Samples L-23028、L-23210および

L-23211は、最適なバルク導電率よりも低い導電率および最適な抵抗率よりも高い抵抗率を有していた。

[ 0 0 7 2 ]

【表 1 A】

表 1A

成分	コントロール L-23012	L-23185	L-23120	L-23119	L-23126
樹脂 A	30.1g				
樹脂 B					
樹脂 C				19.95g	
樹脂 D		17.13	15.63		23.33
開始剤	0.6g (A)	0.4 (B)	0.4 (B)	0.4 (B)	0.4 (B)
禁止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
離型剤	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
グライト A	68g	75	78	78	
グライト B					68
グライト C					
改質剤 A	-			0.35g	
改質剤 B	-	6.17	4.67		6.97
ガラス繊維					
バルク導電率 S/cm	85	85	90	90	70
面積導電率 S/cm <sup>2</sup>	300	260	260	260	220
引張強度 psi	3500	3700	3600	3100	3500
弾性率 psi	4100	5500	4300	3500	4200
抵抗率 OHMS/M <sup>2</sup>		70.9	87.51	71.2	37.7

[ 0 0 7 3 ]

【表 1 B】



表 1B

成分	L-23125	L-23186	L-23039	L-23184	L-23022
樹脂 A					
樹脂 B			19.95		29.95
樹脂 C		22.65		27.65	
樹脂 D	23.33g				
開始剤	04 (B)	0.4 (C)	0.4 (B)	0.4 (C)	0.4 (B)
禁止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
離型剤	1.2	1.3	1.2	1.3	1.2
グラファイト A	34	70	68	70	68
グラファイト B	34				
グラファイト C					
改質剤 A		0.55	0.35	0.55	0.35
改質剤 B	6.97				
ガラス繊維		5	10		
バルク導電率 S/cm	70	70	65	45	40
面積導電率 S/cm <sup>2</sup>	210	210	200	140	140
引張強度 psi	3400	3000	2800	3000	4100
曲げ弾性率 psi	4200	3700	3800	4000	5000
抵抗率 OHMS/M <sup>2</sup>	58.13	123.8	117.6	155.6	222.1

【 0 0 7 4 】

【 表 1 C 】

表 1C

成分	L-23023	L-23063	L-23024	L-23027	L-23026
樹脂 A					
樹脂 B	29.95	29.95	29.95		
樹脂 C				29.95	29.950
樹脂 D					
開始剤	0.4 (C)	0.4 (B)	0.4 (D)	0.4 (C)	0.4 (B)
禁止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
離型剤	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
ガラス A	68	68	68	68	68
ガラス B					
ガラス C					
改質剤 A	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35
改質剤 B					
ガラス繊維					
バルク導電率 S/cm	40	40	35	30	30
面状導電率 S/cm <sup>2</sup>	140	120	130	90	90
引張強度 psi	4200	3500	3100	4700	4300
耐摩耗性 psi	4900	4200	3400	6000	5300
抵抗率 OHMS/M <sup>2</sup>	205.9	-	181.7	320.9	246.8

[ 0 0 7 5 ]

[ 表 1 D ]

表 1D

成分	L-23028	L-23209	L-23210	L-23211	L-23215
樹脂 A					
樹脂 B					
樹脂 C	29.95			28.65	22.65
樹脂 D		21.49	21.49		
開始剤	0.4 (D)	0.4(B)	0.4 (B0)	0.4 (B)	0.4 (B)
禁止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
離型剤	1.2	1.2	1.2	1.3	1.3
グラファイト A	68	42	42	43	70
グラファイト B		26			
グラファイト C	0.35		26	26	
改質剤 A	0.35			0.55	0.55
改質剤 B		8.81	8.81		
ガラス繊維					
バルク導電率 S/cm	30	77	25	45	79
面積導電率 S/cm <sup>2</sup>	100	227	74	132	233
引張り強度 Psi	3800	2700	3900	3000	2600
引張弾性率 psi	5100	3900	5500	4500	4300
抵抗率 OHMS/M <sup>2</sup>	220.9	62.02	377.8	186.46	102.74

【 0 0 7 6 】

【 表 2 A 】

表 2A

成 分	23012	23039	23022	23023	23063
樹脂 A	100				
樹脂 B		100	100	100	100
開始剤 A	1.99				
開始剤 B		2.01	1.34		1.34
開始剤 C				1.34	
禁止剤	0.33	0.50	0.33	0.33	0.33
離型剤	3.99	6.02	4.01	4.01	4.01
グラフト A	225.91	340.85	227.05	227.05	227.05
改質剤 A			1.17	1.17	1.17
樹脂 A		50.13			
バルク導電率 S/cm	85	65	40	40	40
面積導電率 S/cm <sup>2</sup>	300	200	140	140	120
引張強度 psi	3500	2800	4100	4200	3500
曲げ弾性率 psi	4100	3800	5000	4900	4200

【 0 0 7 7 】

【 表 2 B 】

表 2B

成分	23024	23119	23186	23184	23027
樹脂 B	100				
樹脂 C		100	100	100	100
開始剤 B		2.01			
開始剤 C			1.77	1.45	1.34
開始剤 D	1.34				
禁止剤	0.33	0.50	0.44	0.36	0.33
離型剤	4.01	6.02	5.74	4.70	4.01
ワックス A	227.05	390.98	309.05	253.16	227.05
改質剤 A	1.17	1.75	2.43	1.99	1.17
繊維 A			22.08		
バルク導電率 S/cm	35	90	70	45	30
面積導電率 S/cm <sup>2</sup>	130	260	210	140	90
引張強度 psi	135	260	210	140	90
曲げ弾性率 psi	3100	3100	3000	3000	4700

[ 0 0 7 8 ]

【表 2 C】

表 2C

成分	23026	23028	23211	23215	23185
樹脂 C	100	100	100	100	
樹脂 D					100
開始剤 B	1.34		1.40	1.77	2.34
開始剤 D		1.34			
禁止剤	0.33	0.33	0.35	0.44	0.58
離型剤	4.01	4.01	4.54	5.74	7.01
グラファイト A	227.05	227.05	150.09	309.05	437.83
グラファイト C			90.75		
改質剤 A	1.17	1.17	1.92	2.43	
改質剤 B					36.02
撥水剤 B				22.08	
バルク導電率 S/cm	30	30	45	79	85
面積導電率 S/cm <sup>2</sup>	90	100	132	233	260
引張強度 psi	4300	3800	3000	2600	3700
曲げ弾性率 psi	5300	5100	4500	4300	5500

[ 0 0 7 9 ]

[ 表 2 D ]

表 2D

成分	23120	23126	23125	23209	23210
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	2.56	1.71	1.71	1.86	1.86
架止剤	0.64	0.43	0.43	0.43	0.47
離型剤	7.68	5.14	5.14	5.58	5.58
ガラス A	499.04		145.74	195.44	195.44
ガラス B		291.47	145.74	120.99	
ガラス C					120.99
改質剤 B	29.88	29.88	29.88	41.00	41.00
バルク電率 S/cm	90	70	70	77	25
面電率 S/cm <sup>2</sup>	260	220	210	227	74
引張強 psi	3600	3500	3400	2700	3900
曲げ強 psi	4300	4200	4200	3900	5500

[ 0 0 8 0 ]

【表 3 A】

表 3A

成分	23227	23236	23237	23274	23275
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.56	1.44	1.51	2.34	2.34
禁止剤	0.52	0.48	0.50	0.58	0.58
離型剤	6.24	5.77	6.06	7.01	7.01
クワリツ A	390.02	350.96	368.50	420.32	420.32
カーボン A				17.51	
改質剤 B	21.68	22.12	28.22	36.02	36.02
繊維 C					11.68
バルク電率 S/cm	90				
引張強度 psi	2672				
曲げ弾性率 psi	6543				
密度 g/cm <sup>3</sup>		1.67	1.75	1.77	
収縮 mils/in		-1.5	-1.83	-2.25	

[ 0 0 8 1 ]

[ 表 3 B ]



表 3B

成分	23292	23293	23343	23344	23345
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.48	1.56	1.44	1.29	1.20
禁止剤	0.49	0.52	0.48	0.43	0.40
離型剤	5.93	6.24	5.75	5.14	4.80
ワックス A	370.74	395.22	349.78	299.91	272.22
改質剤 B	15.67	16.48	21.71	21.68	21.70
バルク電導 S/cm				72.5	58
引張強度 psi		2170	2547	2448	2679
曲げ弾性率 psi		4616	6503	5423	5897
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.67	1.73	1.71		
収縮 :mils/in	-2.17	-2.08	-2		

[ 0 0 8 2 ]

【表 3 C】

表 3C

成分	23346	23347	23348	23349	23350
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.09	1.03	0.95	0.90	0.84
禁止剤	0.36	0.34	0.32	0.30	0.28
離型剤	4.37	4.13	3.80	3.61	3.36
ワックス A	236.79	216.57	190.11	174.70	154.19
改質剤 B	21.68	21.69	21.67	21.69	21.67
引張強度 psi	3083	3053	2923	3107	3470
曲げ弾性率 psi	5715	5766	5666	5398	5378
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.75	1.71	1.73	1.7	1.64
収縮 :mils/in	-3	-3.5	-3.33	-4	-5

【 0 0 8 3 】

【表 3 D】

表 3D

成分	23351	23352	23360	23361	23362
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	0.80	0.75	2.27	2.21	2.14
禁止剤	0.27	0.25	0.57	0.55	0.54
離型剤	3.22	3.02	6.81	6.62	6.43
グラフト A	142.05	125.75	425.41	413.45	402.14
改質剤 B	21.68	21.73	32.16	28.45	24.93
比抵抗率 S/cm					85.5
引張強度 psi	2787	2629			2155
曲げ弾性率 psi	6167	5998			6017
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.72	1.71	1.65	1.73	1.68
収縮 mils/in	-1.67	-1.83	-1.42	-1.42	-0.67

【 0 0 8 4 】

【表 4 A】

表 4A

成分	23364	23365	23366	23367	23368
樹脂 D	100	100	100	100	100
單量体 A	9.72	8.18	7.05	6.20	5.53
開始剤 B	1.46	1.23	1.06	0.93	0.83
禁止剤	0.49	0.41	0.35	0.31	0.28
離型剤	5.83	4.91	4.23	3.72	3.32
グラファイト A	340.30	265.85	211.57	170.54	138.31
改質剤 B	28.43	28.34	28.35	28.37	28.35
バルク電導率 S/cm	55.99	36.57	32.86	18.37	13.59
引張強度 psi	2647	2697	2701	2880	2992
曲げ弾性率 psi	6044	6131	6149	7002	7338
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.75	1.74	1.71	1.72	1.71
収縮 mils/in	-2.5	-2.83	-3.17	-3.33	-3.83

[ 0 0 8 5 ]

[ 表 4 B ]

表 4B

成 分	23369	23370	23371	23372	23373
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.36	1.15	1.00	0.89	0.79
禁止剤	0.45	0.38	0.33	0.30	0.26
離型剤	5.42	4.61	4.01	3.55	3.18
グラフト A	316.17	249.52	200.33	162.48	132.45
改質剤 B	28.27	28.21	28.21	28.21	28.21
バルク重合	49.49	27.74	25.05	14.01	8.12
S/cm					
引張強度 psi	2974	3358	3014	2952	3154
曲げ強度 psi	6394	6099	6520	6312	6071
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.72	1.76	1.69	1.73	1.72
mils/in	-3.5	-2.5	-2.83	-3.17	-3.53

[ 0 0 8 6 ]

[ 表 4 C ]

表 4C

成 分	23443	23444	23445	23466	23467
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.84	1.72	1.56	1.81	1.54
禁止剤	0.46	0.43	0.39	0.45	0.39
離型剤	5.52	5.15	4.69	5.44	4.62
グラフト A	322.14	291.85	253.91	317.17	250.29
改質剤 B	30.23	30.04	30.08	28.23	28.23
比抵抗率 S/cm	36	21.2	15	39	21
引張強度 psi				2312	2765
曲げ弾性率 psi				6154	5994
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.76	1.76	1.75	1.75	1.73
収縮 mils/in	-2	-2	-2.33	-1.67	-1.83

【 0 0 8 7 】

【 表 4 D 】

表 4D

成 分	23468	23469	23470	23471	23505
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.69	1.75	1.95	2.11	1.48
硬化剤	0.42	0.44	0.49	0.53	0.37
離型剤	5.08	5.25	5.85	6.33	4.45
アクリル A	287.77	284.46	331.55	369.39	241.01
改質剤 B	28.23	28.23	28.23	28.23	23.47
樹脂 D		17.51	19.50	21.11	
バルク 電圧 S/cm	34		45	60	61
引張強度 psi	2466	2804	1797	2010	2821
曲げ強度 psi	5272	7390	6682	4726	4898
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.71	1.6	1.62	1.58	1.75
収縮 mils/in	-2.33	-2	-1.42	-1.67	-2.5

【 0 0 8 8 】

【 表 5 A 】

表 5A

成分	23506	23507	23508	23509	23510
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.63	1.75	1.45	1.59	1.70
禁止剤	0.41	0.44	0.36	0.40	0.43
離型剤	4.89	5.24	4.34	4.77	5.11
ワックス A	277.10	305.41	235.17	270.38	298.00
改質剤 B	23.47	23.47	20.48	20.48	20.48
シリコン重合率	55	45	52	60	65
S/cm					2483
引張強度 psi	2680	2645			4773.67
曲げ強度 psi	4558.7	5264.4			
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.74	1.74	1.79	1.78	1.76
収縮 mils/in	-2.5	-2.33	-2.33	-2.42	-1.75

【 0 0 8 9 】

【 表 5 B 】

表 5B

成分	23566	23567	23568	23581	23582
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.85	1.79	1.75	1.77	1.83
禁止剤	0.46	0.45	0.44	0.44	0.46
離型剤	5.54	5.38	5.26	5.30	5.50
ワックス A	346.42	336.32	328.95	313.33	329.82
改質剤 B				20.48	20.48
改質剤 D	7.62	4.48	2.19		
比抵抗 S/cm		92	94		
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.77	1.78	1.75	1.79	1.76
収縮 mils/in	-1.67	-1.25	-1.25	-1.67	-1.58

【 0 0 9 0 】

【 表 5 C 】



表 5C

成分	23583	23584	23585	23592	23593
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.90	1.98	2.07	1.88	1.97
禁止剤	0.48	0.50	0.52	0.47	0.49
離型剤	5.71	5.95	6.20	5.63	5.91
ワックス A	347.62	366.88	387.80	352.11	369.46
改質剤 B	20.48	20.48	20.48		
改質剤 D				9.39	14.78
バルク重合率 S/cm				88	59
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.78	1.75	1.71	1.71	1.71
収縮 mils/in	-1.5	-1.25	-1.25	-1.67	-1.67

[ 0 0 9 1 ]

[ 表 5 D ]

表 5D

成 分	23594	23721	23722	23723	23724
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	2.07	2.19	2.24	1.94	2.00
硬化剤	0.52	0.55	0.56	0.48	0.50
離型剤	6.22	6.57	6.71	5.82	6.00
ググライト A	388.6	410.51	419.23	354.03	365.18
改質剤 B		27.53	30.24	22.70	26.56
改質剤 D	20.73				
比抵抗率 S/cm		86	93	68	65
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.71	1.74	1.77	1.77	1.78
収縮 mils/in	-1.25	-1.42	-1.08	-1.5	-1.25

【 0 0 9 2 】

【 表 6 A 】

表 6A

成 分	23725	23726	23727	23728	23729
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	2.14	1.90	2.14	1.90	2.14
禁止剤	0.54	0.48	0.54	0.48	0.54
離型剤	6.43	5.71	6.43	5.71	6.43
ガラス D	402.14	347.62			
ガラス E			402.14	347.62	
ガラス F					402.14
改質剤 B	24.93	20.48	24.93	20.48	24.93
バルク電導 S/cm	96	75	81	62	
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.77	1.78	1.81	1.8	
収縮 mils/in	-1.67	-2.33	-0.83	-1	

[ 0 0 9 3 ]

[ 表 6 B ]

表 6B

成分	23730	23731	23732	23733	23734
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.90	2.14	1.90	2.14	2.14
禁止剤	0.48	0.54	0.48	0.54	0.54
離型剤	5.71	6.43	5.71	6.43	6.43
ワックス A				249.33	249.33
ワックス E				152.82	
ワックス F	347.62				152.82
ワックス G		402.14	347.62		
改質剤 B	20.48	24.93	20.48	24.93	24.93
バルク 導電率 S/cm		32	30	48	25
密度 g/cm <sup>3</sup>				1.81	1.81
収縮 mils/in				-1.33	-1.83

【 0 0 9 4 】

【 表 6 C 】

表 6C

成分	23735	23736	23737	23738	23739
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	2.14	2.14	1.90	1.90	1.90
禁止剤	0.54	0.54	0.48	0.48	0.48
離型剤	6.43	6.43	5.71	5.71	5.71
グラファイト A	249.33	249.33	215.52	215.52	215.52
グラファイト D		152.82			
グラファイト E			132.10		
グラファイト F	152.82			132.10	
グラファイト G	152.82				132.10
改質剤 B	24.93	24.93	20.48	20.48	20.48
バルク 導電率 S/cm	38	90	50	26	31
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.79	1.67	1.79	1.8	1.8
収縮 mils/in	-2.08	-1.58	-1.83	-2.33	-2.67

【 0 0 9 5 】

【 表 6 D 】

表 6D

成 分	23740	23755	23756	23757	23758
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.90	2.17	2.20	1.93	1.95
終止剤	0.48	0.54	0.55	0.48	0.49
離型剤	5.71	6.52	6.61	5.78	5.85
グラファイト A	215.52	407.61	413.22	341.81	356.10
グラファイト D	132.10				
改質剤 B	20.48	23.91	22.87	19.52	18.54
改質剤 D		2.72	5.51	2.41	4.88
ビルク等電導 S/cm	68	70	97	92	89
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.75	1.77	1.67	1.79	1.79
収縮 mils/in	-1.83	-1.83	-1.83	-2	-2.17

【 0 0 9 6 】

【 表 7 A 】

表 7A

成 分	23803	23804	23805	23806	23830
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	2.06	2.09	2.16	2.19	2.16
禁止剤	0.52	0.52	0.54	0.55	0.54
離型剤	6.19	6.27	6.49	6.58	6.49
グラファイト A	376.29	381.20	394.59	405.48	394.59
改質剤 B	25.26	25.59	25.59	26.30	30.00
改質剤 E	5.15	6.53	10.81	6.85	6.76
バルク電導 S/cm	62	83	83	90	
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.77	1.77	1.76	1.77	1.79
収縮 mils/in	-1.83	-1.50	-1.33	-1.67	-1.58

[ 0 0 9 7 ]

[ 表 7 B ]

表 7B

成 分	23831	23832	23833	23834	23835
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	2.11	2.18	2.23	2.09	2.09
禁止剤	0.53	0.54	0.56	0.52	0.52
離型剤	6.33	6.54	6.69	6.27	6.27
グラファイト A	385.22	397.82	406.69		
グラファイト H				381.20	
グラファイト I					381.20
改質剤 B	25.59	25.61	25.63	25.59	25.59
改質剤 E		6.81	6.96	6.53	6.53
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.74	1.76	1.72		
収縮 mils/in	-1.42	-1.33	-1.25		

[ 0 0 9 8 ]

【表 7 C】

表 7C

成 分	23836	23837	23838	23839	23840
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	2.09	2.24	2.24	2.24	2.24
禁止剤	0.52	0.56	0.56	0.56	0.56
離型剤	6.27	6.71	6.71	6.71	6.71
グラファイト A		408.28	408.28	408.28	408.28
グラファイト J	381.20				
カーボン B		0.56			
カーボン C			0.56		
カーボン D				0.56	
カーボン E					0.56
改質剤 B	25.59	25.56	25.56	25.56	25.56
改質剤 E	6.53	6.99	6.99	6.99	6.99
改質剤 F		8.39	8.39	8.39	8.39
密度 g/cm <sup>3</sup>		1.77	1.80	1.76	1.74
収縮 mils/in		-1.08	-0.92	-1.17	-1.08

[ 0 0 9 9 ]

【表 7 D】



表 7D

成分	23878	23879	23880	23881	23896
樹脂 D	100	100	100	100	100
開始剤 B	2.26	2.37	2.28	2.39	1.48
硬化剤	0.57	0.59	0.57	0.60	0.49
離型剤	6.79	7.11	6.83	7.16	5.93
ガラス粉 A	418.55	444.31	421.41	447.49	370.74
改質剤 B	25.57	25.59	25.57	25.60	5.68
改質剤 C					9.99
改質剤 E			7.12	7.46	
改質剤 F	11.88	12.44	5.69	5.97	

[ 0 1 0 0 ]

[ 表 8 A ]

表 8A

成分	23297	23301	23302	23363	23422
樹脂 E	100	100	100	100	100
開始剤 B	1.56	1.38	1.33	1.06	1.75
硬化剤	0.52	0.46	0.44	0.35	0.58
離型剤	6.24	5.50	5.31	4.24	7.00
ガラス粉 A	395.22	343.88	331.86	240.03	466.74
改質剤 B	5.98	2.66	1.28	2.65	2.68
改質剤 C	10.50	4.63	2.26	4.66	4.67
バルク電導		72.5		35	
S/cm					
密度 g/cm <sup>3</sup>		1.62		1.53	1.6
収縮 mils/in		-2.33		-1.33	-0.92

[ 0 1 0 1 ]

[ 表 8 B ]

表 8B

成 分	23423	23452	23453	23454	23455
樹脂 D		50.03	60.00	70.03	80.00
樹脂 E	100				
樹脂 F		49.97	40.00	29.97	20.00
開始剤 B	2.40	2.14	2.14	2.14	2.14
禁止剤	0.80	0.54	0.54	0.54	0.54
離型剤	9.61	6.43	6.43	6.43	6.43
ガラス A	680.54	402.14	402.14	402.14	402.14
改質剤 B	2.64	24.93	24.93	24.93	24.93
改質剤 C	4.64				
1.67 等電率 S/cm		63	70.5	70	83.5
引張強度 psi		2441	2497	2404	2561
曲げ強度 psi		5030	5126	4284	5391
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.47	1.71	1.74	1.75	1.66
収縮 mils/in	-0.25	-1.17	-1.58	-1.67	-1.42

[ 0 1 0 2 ]

[ 表 8 C ]

表 8C

成分	23530	23531	23646	23647	23648
樹脂 F	100	100			
樹脂 G			100	100	100
開始剤 B	1.85	1.79	1.81	1.91	2.02
禁止剤	0.46	0.45	0.45	0.48	0.50
離型剤	5.54	5.38	5.42	5.72	6.06
ガラス粉 A	346.42	336.32	338.75	357.65	378.60
改質剤 B			5.24	11.11	17.62
改質剤 D	7.62	4.48			
バルク転写 S/cm			86	58	46
引張強度 psi	2305.56	2155.56			
耐打強度 psi	4548.8	4421.3			
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.69	1.75	1.71	1.72	1.65
収縮 mils/in	-0.42	-1.67	-1.58	-1.42	-1.33

[ 0 1 0 3 ]

[ 表 8 D ]

表 8D

成 分	23649	23650	23651	23688
樹脂 D				53.96
樹脂 I	100	100	100	
樹脂 J				46.04
開始剤 B	1.75	1.77	1.79	
開始剤 D				2.08
禁止剤	0.44	0.44	0.45	0.52
離型剤	5.26	5.31	5.38	6.25
グラファイト A	328.95	331.86	336.32	385.42
改質剤 B				15.63
改質剤 D	2.19	3.10	4.48	
改質剤 F				10.94
バルク電導率 S/cm	93	79	64	
密度 g/cm <sup>3</sup>	1.77	1.74	1.73	
収縮 mils/in	-1.5	-1.08	-1.5	

特許規則に従って、最良の様式および好ましい実施形態が示されてきたが、本発明の範囲は、それに限定されず、むしろ添付の特許請求の範囲によって制限される。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

図 1 は、双極電池プレートを利用する燃料電池アセンブリの図示である。

【図 2】

図 2 は、本発明に従って製造できる双極燃料電池プレートの図示である。

【 図 1 】

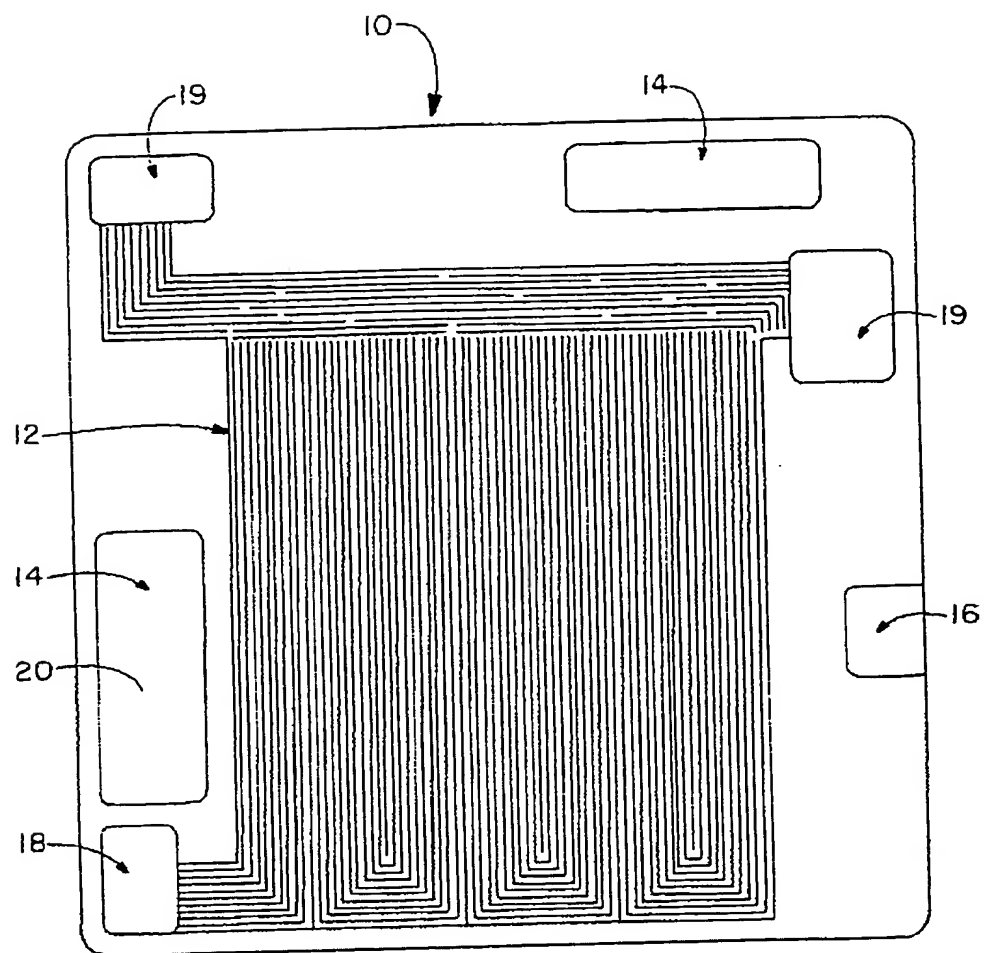
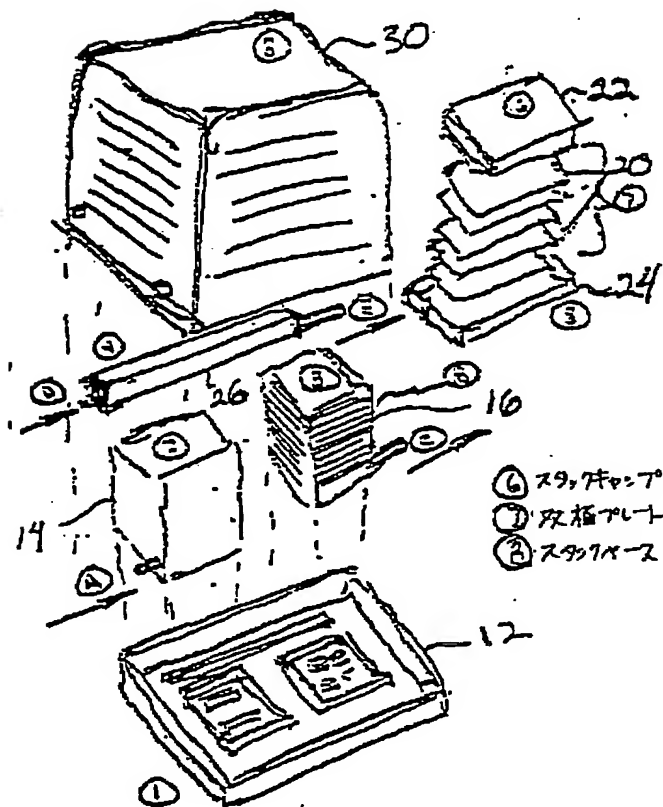


FIG.-1

【 図 2 】

エネルギー発生装置コンセルタクト

- |            |                              |
|------------|------------------------------|
| ① ベースユニット  | A. 燃料 中へ                     |
| ② 改修装置     | B. 電圧 外へ                     |
| ③ 燃料電池スタック | C. 2430 外へ                   |
| ④ 熱交換器     | D. KXスライクH <sub>2</sub> O 中へ |
| ⑤ 風扇       | E. ドキスライクH <sub>2</sub> O 外へ |

【手続補正書】

【提出日】平成 13 年 10 月 25 日 ( 2001. 10. 25 )

【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0027

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0027】

図 2 は、燃料電池の未組み立て部品を図示している。この燃料電池は、ベースユニット 32 (これは、改質装置 34 を受容する陰刻手段を含む) および燃料電池スタック 36 (これは、複数の双極プレート 40 から構成されており、これらのプレートは、スタックキャップ 42 とスタックベース 44 との間に挟まれている) を有する。この燃料電池は、さらに、熱交換器 38 を含む。囲壁 30 は、このユニットに対して、漏れ防止ハウジングを提供する。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】図面の簡単な説明

【補正方法】変更

【補正の内容】

【図面の簡単な説明】

【図 1】

図 1 は、本発明に従って製造できる双極燃料電池プレートの図示である。

【図 2】

図 2 は、双極電池プレートを利用する燃料電池アセンブリの図示である。

【手続補正 3】

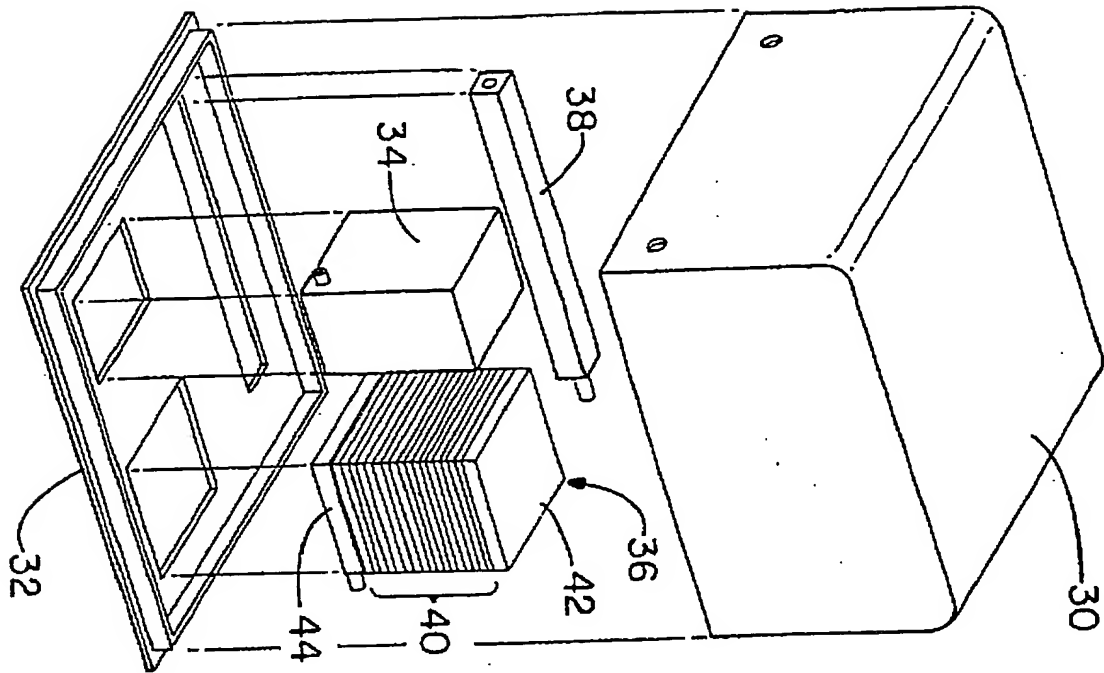
【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】図 2

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 図 2 】





## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.  
PCT/US 00/06999

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 7 H01M6/18 H01M10/40 C08F283/01 C08F290/06 C08K3/04  
C08L67/06 C08L63/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 7 H01M C08F C08L C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)  
EPO-Internal, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 614 581 A (COBBLEDICK DAVID S ET AL) 25 March 1997 (1997-03-25) column 4, line 41-57 column 3, line 53 -column 4, line 24	1-5, 10-16,33
X	US 4 908 157 A (FONTANA JACK J ET AL) 13 March 1990 (1990-03-13) column 3, line 1-20	1
A	US 5 250 228 A (BAIGRIE STEPHEN ET AL) 5 October 1993 (1993-10-05) claim 1	1
A	US 5 516 546 A (HARI SIEGFRIED ET AL) 14 May 1996 (1996-05-14) claim 1	1

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

31 July 2000

Date of mailing of the international search report

08/08/2000

Name and mailing address of the ISA  
European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040. Tx. 31 651 epo nl.  
Fax (+31-70) 340-3018

Authorized officer

MEULEMANS, R

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/US 00/06999

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5614581 A	25-03-1997	DE 69408195 D DE 69408195 T EP 0622386 A JP 6320681 A KR 138483 B	05-03-1998 05-11-1998 02-11-1994 22-11-1994 27-04-1998
US 4908157 A	13-03-1990	NONE	
US 5250228 A	05-10-1993	US 5382384 A	17-01-1995
US 5516546 A	14-05-1996	DE 4317302 A CA 2124133 A EP 0626430 A FI 942402 A SG 49822 A	01-12-1994 26-11-1994 30-11-1994 26-11-1994 15-06-1998

## フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マ-コード (参考)
C 0 8 K 5/16		C 0 8 K 5/16	
C 0 8 L 23/06		C 0 8 L 23/06	
27/18		27/18	
29/10		29/10	
63/10		63/10	
67/06		67/06	
H 0 1 B 1/24		H 0 1 B 1/24	Z
(81) 指定国	EP(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, I T, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, B J, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(GH, GM, K E, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW ), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, T J, TM), AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, C Z, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, I S, J P, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, L R, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, T J, TM, T R, TT, UA, UG, UZ, VN, YU, ZW		
Fターム(参考)	4J002 BB032 BD152 BE042 CD201 CF031 CF211 CK031 DA027 DA037 DE078 DE088 EA036 EH106 ER008 FD117 FD202 GQ02 5G301 DA18 DA19 DA53 DD10 5H026 AA03 AA04 AA05 AA06 HH05 HH06		

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**